

燃料電池

本発明は、燃料電池に関し、より詳しくは、主に燃料ガスと空気との混合ガス中において安定的に発電する燃料電池に関する。

10 従来より、燃料電池のセルデザインとして、平板型（スタック型）、円筒型（チューブ型）などが提案されている。

平板型セルは、例えば、特開平5-3045号公報に開示されているように、板状の電解質の表面及び裏面に燃料極及び空気極をそれぞれ配置したものであり、こうして形成されたセルはセパレーターを介して複数個積層された状態で使用される。セパレーターは各セルに供給される燃料ガスと空気とを完全に分離する役割を果たしており、各セルとセパレーターとの間にはガスシールが施されている。しかしながら、この平板型セルでは、セルに対して圧力をかけてガスシールを施すため、セルが振動や熱サイクルなどに対して脆弱であるなどの欠点があり、実用化に大きな課題を有している。

20 一方、円筒型セルは、例えば、特開平5-94830号公報に開示されている
ように、円筒形の電解質の外周面及び内周面に燃料極及び空気極をそれぞれ配置
したものであり、円筒縦縞型、円筒横縞型などが提案されている。ところが、円
筒型セルは、ガスシール性に優れるという利点を有する一方、平板型セルに比べ
て構造が複雑であるため、製造プロセスが複雑になり、製造コストが高くなる
25 という欠点がある。

さらに、次の問題もある。平板型セル及び円筒型セルのいずれも、性能を向上させるためには電解質の薄膜化が要求され、電解質材料のオーミック抵抗の低減が必要となるが、電解質が薄すぎると脆弱化してしまい、耐振性や耐久性が低下するという問題があった。

- このため、上述した平板型、円筒型に代わる燃料電池として、例えば、特開平 8-264195 号公報に開示されているように、燃料極及び空気極を固体電解質からなる基板の同一面上に配置し、燃料および空気の混合ガスを供給することにより電解質表面を中心にイオン伝導を生じさせて発電を行う非隔膜式固体酸化
- 5 物形燃料電池が提案されている。この燃料電池によれば、燃料ガスと空気とを分離する必要がないため、セパレーター及びガスシールが不要となり、構造及び製造工程の大幅な簡略化を図ることができる。

- 上記のように、特開平 8-264195 号公報に記載の燃料電池では、電解質を基板として使用し、その一方面に複数の燃料極及び空気極を配置している。しかしながら、電解質において電池反応に必要なとされるのは電極近傍の部分であるため、上記のように基板として用いた電解質では、電池反応に寄与していない部分が多く存在していた。ここで、電解質の材料コストは決して安くないことから、このように電池反応に寄与しない部分が存在すると、コストパフォーマンスが低下するという問題があった。
- 10

- 15 本発明は、上記問題を解決するためになされたものであり、電池性能を低下させることなく、コストパフォーマンスを増大することが可能な燃料電池を提供することを目的とする。

発 明 の 開 示

- 20 第 1 の本発明は、電解質、燃料極、及び空気極を有する単電池セルを少なくとも 1 つ備えた燃料電池であって、上記問題を解決するためになされたものであり、前記単電池セルを支持する基板を備えており、前記電解質が前記基板の一方面に配置されるとともに、前記燃料極及び空気極が、前記基板の一方面において前記電解質を挟んで両側にそれぞれ隣接されたものである。

- 25 この構成によれば、基板上に電解質を配置し、この電解質を挟んで両側に燃料極及び空気極を隣接配置することで、単電池セルを形成している。したがって、電池反応に不要な電解質をできるだけ用いることなく、単電池セルを構成することができるため、燃料電池のコストパフォーマンスを向上することができる。

また、電解質、燃料極及び空気極が基板に支持されているため、良好な耐久性

を維持することができるとともに、電解質を狭幅化することで高い出力(electric power)を得ることができる。さらに、従来の燃料電池では、電解質の表層付近におけるイオン伝導のみを利用して発電を行っていたが、本発明では電解質が燃料極と空気極との間に挟まれているため、電解質の表層付近におけるイオン伝導に加え、電解質の内部を通るイオン伝導を利用することができ、この点からもより高い出力を得ることが可能となる。

上記燃料電池において、電解質、燃料極及び空気極の基板表面からの高さは、すべて同じにすることができるほか、次のようにしてもよい。すなわち、燃料極又は空気極の基板表面からの高さを、いずれも電解質の基板表面からの高さよりも大きくすることができる。これにより、電解質の表層付近におけるイオン伝導と電解質内でのイオン伝導との双方を良好なものとすることができる。

また、上記のように燃料極及び空気極の基板表面からの高さを電解質の基板表面からの高さより大きくした場合、電解質の上面に燃料極及び空気極の一部を離間した状態で形成することが好ましい。この構成によれば、電解質の上面に形成された燃料極及び空気極によって、電解質の上面付近のイオン伝導がさらに大きくなるため、より高い出力を得ることができる。

上記燃料電池では、基板の一方面に単電池セルを配置しているが、基板の他方面にも配置することができる。すなわち、基板の一方面に加え、他方面に少なくとも1つの単電池セルを配置し、この単電池セルにおける電解質を基板の他方面に配置するとともに、燃料極及び空気極を基板の他方面において電解質を挟んで両側にそれぞれ隣接させることができる。これにより、同一基板上に上記構成の多数の単電池セルを形成できるため、燃料電池をコンパクトにしたままで、高い出力を得ることができる。

また、上記のように構成された単電池セルを基板上に複数個配置し、これらをインターコネクターで接続することもできる。これによって、同一基板上に多数の燃料極及び空気極を形成できるため、高い発電出力を得ることができる。このとき、複数の単電池セルは、直列または並列に接続してもよいし、直列及び並列が混在した状態で接続することもできる。

特に、単電池セルを直列に接続した場合には次の効果を得ることができる。例

えば、従来例では、一枚の電解質上に燃料極及び空気極からなる電極体を複数個配置しているため、これら電極体の間に存在する電解質によって起電力の相殺が発生するという問題があった。これに対して、本発明では、単電池セル内にのみ電解質が存在し、隣り合う単電池セル間に電解質が存在しないため、複数の単電池セルを直列に接続しても、起電力の相殺が発生することなく、高い出力を得ることができる。

上記燃料電池において、電解質の燃料極及び空気極による挟持方向の幅は、10～500 μm であることが好ましい。これにより、高い出力を得ることができる。

- 10 第2の本発明は、電解質、燃料極、及び空気極を有する単電池セルを少なくとも1つ備えた燃料電池であって、上記問題を解決するためになされたものであり、前記単電池セルを支持する基板を備えており、前記電解質が前記基板の一方面に配置されるとともに、前記燃料極及び空気極のいずれか一方の電極が前記電解質上に配置され、他方の電極が、前記一方の電極と非接触状態で、しかも、少なくとも一部が前記基板の一方面に配置されて前記電解質と接触していることを特徴としている。

- 20 この燃料電池では、一方の電極を基板上の電解質の上に配置するとともに、他方の電極を基板上で電解質と接触させた状態で配置している。これにより、電池反応に不要な電解質をできるだけ用いることなく、単電池セルを構成することができるため、燃料電池のコストパフォーマンスを向上することができる。また、この燃料電池では、電解質の表面のみならず、電解質の内部にもイオン伝導が生じるため、より高い出力を得ることができる。

- 25 このとき、他方の電極と一方の電極とが非接触状態を維持できるのであれば、他方の電極を電解質上の一部に配置することもできる。また、他方の電極を基板上に配置する場合には、他方の電極の厚みを調節するだけで、両電極の非接触状態を形成することができる。すなわち、他方の電極の厚みを電解質の厚みよりも小さくすれば非接触状態を形成できるため、燃料電池が微小になっても、両電極間の距離の調整を容易に行うことができる。また、厚みの調整によって両電極間の距離の微小化を容易に行うことができる。

上記のように構成された単電池セルを基板上に複数個配置し、これらをインターコネクターで接続することもできる。これによって、同一基板上に多数の燃料極及び空気極を形成できるため、より多くの電流或いは高い電圧を得ることができる。このとき、複数の単電池セルは、直列または並列に接続してもよいし、直列及び並列が混在した状態で接続することもできる。特に、単電池セルを直列に接続した場合には、上記第1の発明に係る燃料電池と同様に、起電力の相殺が発生する可能性がないため、高い電圧を得ることができる。

上記燃料電池においては、上記電解質、燃料極、及び空気極を、印刷形成法によって形成することが好ましい。こうすることで、厚み、寸法の精密な調整が可能になり、両電極間の距離を正確に調整することができる。また、これに起因して電池反応に必要な部分に対して任意に電解質を形成することが可能になるため、使用する電解質の量を最小限に少なく抑えることができ、さらなるコストの低減が可能となる。

上記燃料電池では、基板の一方面に単電池セルを配置しているが、基板の他方面にも配置することができる。すなわち、基板の一方面に加え、他方面に少なくとも1つの単電池セルを配置し、この単電池セルにおける電解質を基板の他方面に配置するとともに、燃料極及び空気極のいずれか一方の電極をこの電解質上に配置し、他方の電極を、一方の電極と非接触状態で、しかも、少なくとも一部が基板の他方面に配置されて電解質と接触するようにすればよい。これにより、同一基板上に上記構成の多数の単電池セルを形成できるため、燃料電池をコンパクトにしたままで、高い出力を得ることができる。

また、この燃料電池に使用する基板は、耐熱性の観点から、電子導電性を有さないセラミックス系材料で構成することが好ましい。

25 図面の簡単な説明

図1は、本発明に係る燃料電池の第1実施形態の断面図（a）及び平面図（b）である。

図2は、図1に示す燃料電池の製造方法の一例を示す図である。

図3は、図1に示す燃料電池の他の例を示す断面図である。

図4は、第1実施形態に係る燃料電池を複数個準備し、直列に接続した例を示す平面図である。

図5は、本発明に係る燃料電池の第2実施形態の断面図(a)及び平面図(b)である。

5 図6は、本発明に係る燃料電池の第3実施形態の断面図である。

図7は、図5に示す燃料電池の製造方法の一例を示す図である。

図8は、第3実施形態に係る燃料電池の他の例を示す断面図である。

図9は、第3実施形態に係る燃料電池を複数個準備し、直列に接続した例を示す断面図である。

10 図10は、比較例を示す平面図(a)及び正面図(b)である。

発明を実施するための最良の形態

(第1実施形態)

以下、本発明に係る燃料電池を固体酸化物形燃料電池に適用した場合の第1実施形態について図面を参照しつつ説明する。図1は本実施形態に係る燃料電池の断面図(a)及び平面図(b)である。

図1に示すように、この燃料電池は、電解質3、燃料極5、及び空気極7を有する1個の単電池セルCを備え、この単電池セルCが基板1上に支持されている。

20 単電池セルCは、次のように構成されている。まず、電解質3は、基板1の上面(一方面)に帯状に形成されており、この電解質3を挟んでその両側には帯状の燃料極5及び空気極7がそれぞれ隣接配置されている。燃料極3及び空気極5の基板1表面からの高さは、それぞれ電解質3の基板1表面の高さよりも大きいことが好ましい。これは、電解質3の表層付近におけるイオン伝導性と電解質内
25 でのイオン伝導性との双方を良好なものとし、より高い出力得るためである。なお、これら電解質3、燃料極5及び空気極7の高さは、1～1000μmであることが好ましい。

電解質3の燃料極5及び空気極7による挟持方向の幅wは、高い発電効率を得られるようにできるだけ狭いことが好ましい。つまり、幅wが大きすぎると、電

解質の内部抵抗が大きくなって発電効率が低下する傾向にあるからである。この観点から、幅 w の上限は、 $1000\mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $500\mu\text{m}$ 以下がさらに好ましく、 $200\mu\text{m}$ 以下が特に好ましい。一方、その下限であるが、効率的な形成が難しくなること、及び燃料極と空気極とが接触して短絡が発生するのを防止するため、 $1\mu\text{m}$ 以上が好ましく、 $10\mu\text{m}$ 以上がさらに好ましい。

次に、上記燃料電池を構成する材料について説明する。基板1は、電解質3、燃料極5及び空気極7との密着性に優れ、且つ、 1500°C 以上の耐熱性に優れた電子導電性を有さない材料で形成されることが好ましい。具体的には、アルミナ系材料、シリカ系材料、チタン系材料等のセラミックス系材料を好ましく用いることができる。なお、基板1の厚みは特に限定されないが、強度面及びコスト面から $50\mu\text{m}\sim 50\text{mm}$ 程度を例示することができる。

電解質3の材料としては、固体酸化物形燃料電池の電解質として公知のものを使用することができ、例えば $(\text{Ce}, \text{Sm})\text{O}_3$ 、 $(\text{Ce}, \text{Gd})\text{O}_3$ などのセリア系、 $(\text{La}, \text{Sr})(\text{Ga}, \text{Mg})\text{O}_3$ などのランタン・ガレード系、スカンジウム安定化ジルコニア (ScSZ) 、イットリア安定化ジルコニア (YSZ) などのジルコニア系等の酸素イオン伝導性セラミックス系材料を用いることができる。

燃料極5及び空気極7は、セラミックス粉末材料により形成することができる。このとき用いられる粉末の平均粒径は、通常 $10\text{nm}\sim 100\mu\text{m}$ であり、好ましくは $50\text{nm}\sim 50\mu\text{m}$ であり、さらに好ましくは $100\text{nm}\sim 10\mu\text{m}$ である。なお、平均粒径は、例えば、JISZ8901にしたがって計測することができる。

燃料極5を形成するセラミックス粉末材料としては、例えば、ニッケルと酸素イオン伝導性材料との混合物を用いることができる。このとき用いられる酸素イオン伝導性材料としては、例えば $(\text{Ce}, \text{Sm})\text{O}_3$ 、 $(\text{Ce}, \text{Gd})\text{O}_3$ などのセリア系、 $(\text{La}, \text{Sr})(\text{Ga}, \text{Mg})\text{O}_3$ などのランタン・ガレード系、スカンジウム安定化ジルコニア (ScSZ) やイットリア安定化ジルコニア (YSZ) などのジルコニア系等のセラミックス材料を挙げることができ、このようなセラミックス材料と、ニッケルとの混合物で燃料極5を形成することが好ましい。

このうち、ニッケル-セリア系酸化物のサーメットで燃料極 5 を形成することが特に好ましい。なお、酸素イオン伝導性セラミックス材料とニッケルとの混合形態は、物理的な混合形態であってもよいし、ニッケルへの粉末修飾などの形態であってもよい。また、上述したセラミックス材料は、1 種を単独で、或いは 2 種以上を混合して使用することができる。

空気極 7 を形成するセラミックス粉末材料としては、例えば、ペロブスカイト型金属酸化物を使用することができる。具体的には $(\text{Sm}, \text{Sr})\text{CoO}_3$, $(\text{La}, \text{Sr})\text{MnO}_3$, $(\text{La}, \text{Sr})\text{CoO}_3$, $(\text{La}, \text{Sr})(\text{Fe}, \text{Co})\text{O}_3$, $(\text{La}, \text{Sr})(\text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni})\text{O}_3$ などを挙げることができる。これらセラミックス粉末は、1 種を単独で使用することもできるし、2 種以上を混合して使用することもできる。

上記電解質 3、燃料極 5、及び空気極 7 は、上述した材料を主成分として、さらにワニス、有機溶媒などが適量加えられることにより形成される。

次に、上述した燃料電池の製造方法の一例を、図 2 を参照しながら説明する。
まず、上述した電解質 3、燃料極 5 及び空気極 7 の粉末材料を主成分として、ワニス、有機溶媒などを適量加えて混練し、電解質ペースト、燃料極ペースト、空気極ペーストをそれぞれ作製する。各ペーストの粘度は、 $10^3 \sim 10^6 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 程度であることが好ましい。

次いで、図 2 (a) に示すように、基板 1 上に電解質ペーストを帯状に塗布した後、所定の時間及び温度で乾燥・焼結を行うことにより、電解質 3 を形成する。電解質ペーストを塗布する方法としては、スクリーン印刷法が好適であるが、ロールコート法、グラビアロールコート法、リソグラフィ法などを適用することも可能である。同様に、図 2 (b) に示すように、燃料極ペーストを電解質 3 の一方側に隣接するように帯状に塗布した後、乾燥・焼結を行うことにより燃料極 5 を形成する。続いて、図 2 (c) に示すように、空気極ペーストを電解質 3 の他方側に隣接するように帯状に塗布した後、乾燥・焼結を行うことにより空気極 7 を形成すると、図 1 で説明した燃料電池が形成される。電解質 3、燃料極 5 及び空気極 7 の基板 1 表面からの高さは、使用材料の粒径や印刷などの塗布方法による限界を考慮すると、 $5 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度であることが好ましい。なお、

図示を省略するが、各電極 5, 7 には、電流を取り出すための集電部が設けられる。

上記のように構成された燃料電池は、次のように発電が行われる。まず、各単電池セル C の一方面上に、メタンやエタンなどの炭化水素からなる燃料ガスと空
5 気との混合ガスを高温の状態（例えば、400～1000℃）で供給する。これにより、燃料極 5 と空気極 7 との間の電解質 3 で、酸素イオン伝導が起こって発電が行われる。

以上のように本実施形態に係る燃料電池によれば、基板 1 上に電解質 3 を配置し、この電解質 3 を挟んで両側に燃料極 5 及び空気極 7 を隣接配置することで、
10 単電池セル C を形成している。したがって、電池反応に不要な電解質をできるだけ用いることなく、単電池セル C を構成することができるため、燃料電池のコストパフォーマンスを向上することができる。また、電解質 3、燃料極 5 及び空気極 7 が基板 1 に支持されているため、良好な耐久性を維持することができるとともに、電解質 3 を狭幅化することで高い出力を得ることができる。さらに、従来の燃料電池では、電解質の表層付近におけるイオン伝導のみを利用して発電を行
15 っていたが、本実施形態に係る燃料電池では電解質 3 が燃料極 5 と空気極 7 との間に挟まれているため、電解質 3 の表層付近におけるイオン伝導に加え、電解質 3 の内部を通るイオン伝導を利用することができる。したがって、より高い出力を得ることができる。

20 なお、上記燃料電池では、燃料極 3 及び空気極 5 の基板 1 からの高さを、電解質 3 の基板 1 からの高さよりも大きくしているが、これらを同じ高さにしたり、或いは電解質 3 の高さを大きくすることもできる。

上記のように燃料極 5 及び空気極 7 を電解質 3 よりも高く形成する場合に、さらに次のように構成することもできる。図 3 に示すように、この例では、電解質
25 3 の上面に、燃料極 5 及び空気極 7 の一部 5 a, 7 a を積層している。このとき、電解質 3 上の両電極 5 a, 7 a は離間した状態となっている。この構成によれば、電解質 3 の上面に形成された燃料極 5 及び空気極 7 によって、電解質 3 上面付近のイオン伝導がさらに大きくなるため、より高い出力を得ることができる。

ところで、上記説明では、基板 1 上に 1 個の単電池セルを形成しているが、複

数の単電池セルを形成することもできる。図4にその例を示す。同図に示すように、この例では、9個の単電池セルCをインターコネクター9を介して接続するとともに、2個の集電部11を形成している。これら集電部11は、両端に配置される単電池セルCの燃料極5及び空気極7にインターコネクター9を介してそれぞれ接続される。なお、複数の単電池セルは、このように直列に接続することもできるし、並列に接続することもできる。或いは、直列と並列を混在させることもできる。こうすることで、多電池セルとすることができ、高電圧の取り出しが可能となる。

次に、図4に示す燃料電池の製造方法について説明する。電解質3、燃料極5、及び空気極7を構成する材料は、上述したものと同一である。インターコネクター9及び集電部11は、Pt, Au, Ni, Ag, Cu, SUS, 又はLa (Cr, Mg) O₃, (La, Ca) CrO₃, (La, Sr) CrO₃などのランタン系材料によって形成することができ、これらのうちの1種を単独で使用してもよいし、2種以上を混合して使用してもよい。そして、電解質等と同様の添加物を加え、 $10^3 \sim 10^6 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 程度のインターコネクター用ペースト及び集電部ペーストを形成する。

続いて、スクリーン印刷法によって基板1上の9つの位置に電解質ペーストを帯状に塗布し、上記と同様に乾燥・焼結して電解質3を形成する。次に、燃料極ペーストを各電解質3の一方側に隣接するように帯状に塗布した後、乾燥・焼結を行うことにより燃料極5を形成する。そして、空気極ペーストを各電解質3の他方側に隣接するように帯状に塗布した後、乾燥・焼結を行うことにより空気極7を形成する。これにより、基板1上には9つの単電池セルCが形成される。

これに続いて、隣接する複数の単電池セルCを直列に接続するように、単電池セルC間にインターコネクター用ペーストをスクリーン印刷法によって線状に塗布し、乾燥・焼結を行うことによりインターコネクター9を形成する。このとき、インターコネクター9は、電解質3間の燃料極5と空気極7とを結ぶように形成する。また、直列の両端部に位置する単電池セルCから延びるインターコネクター9を形成しておき、その端部に集電部ペーストを塗布し、乾燥・焼結して集電部11を形成する。以上の工程により、図4に示すような燃料電池が完成する

(第2実施形態)

以下、本発明に係る燃料電池を固体酸化物形燃料電池に適用した場合の第2実施形態について図面を参照しつつ説明する。図5は本実施形態に係る燃料電池の

5 断面図(a)及び平面図(b)である。

図5に示すように、この燃料電池においては、基板1の一方面上に帯状の電解質3が略等間隔に複数配置されており、各電解質3を挟んで両側に帯状の燃料極5及び空気極7がそれぞれ隣接配置されている。そして、電解質3、燃料極5及び空気極7によって、各単電池セルCが構成されている。隣接する単電池セルC
10 の間、つまり燃料極5と空気極7との間には帯状のインターコネクター9がそれぞれ隣接配置されており、これらインターコネクター9を介して、各単電池セルCが直列に接続されている。また、直列の両端部に配置される単電池セルCには、インターコネクター9と反対側の側部に帯状の集電部11が隣接配置されている。なお、各電解質3、電極5、7、インターコネクター9、及び集電部11の
15 長さは、ほぼ同じである。

この燃料電池を構成する基板1、電解質3、燃料極5、及び空気極7の高さ及び幅wは、上記第1実施形態と同様にすることができる。また、基板1、電解質3、燃料極5、空気極7、インターコネクター9、及び集電部11は、上記第1実施形態で示した材料で形成することができる。

20 上記燃料電池も第1実施形態で示したものと同様の方法で製造することができる。すなわち、基板1上に等間隔に帯状の電解質3を形成した後、各電解質3の一方側に燃料極5を形成する。続いて、各電解質3の他方側に空気極7を形成して単電池セルCを形成した後、これらの間にインターコネクター9を形成する。最後に、両端の単電池セルCに隣接するように集電部11を形成する。こうして
25 形成された燃料電池は、第1実施形態と同様の混合ガスを供給することで、発電が行われる。

以上のように本実施形態によれば、上記第1実施形態と同様に、燃料電池のコストパフォーマンスを向上することができるとともに、より高い出力を得ることができる。

(第3実施形態)

次に、本発明に係る燃料電池を固体酸化物形燃料電池に適用した場合の第3実施形態について図面を参照しつつ説明する。図6は本実施形態に係る燃料電池の一部断面図である。

- 5 図6に示すように、この燃料電池は、電解質3、燃料極5、及び空気極7を有する1個の単電池セルCを備え、この単電池セルCが基板1上に支持されている。

- この単電池セルCにおいて、電解質3は、基板1の上面（一方面）に矩形状に形成されており、その上面には電解質3とほぼ同じ形状の空気極7が形成されて
- 10 いる。そして、基板1において電解質3と隣接する位置には、燃料極5が形成されている。燃料極5は、電解質3の側面に当接するとともに、その厚みが電解質3よりも小さくなっている。すなわち、燃料極5の上面は、電解質3の上面よりも低い位置にある。これにより、燃料極5と空気極7とは、電解質3と燃料極5との厚みの差Dに相当する距離をおいて配置されていることになる。この燃料電池を構成する基板1、電解質3、燃料極5、及び空気極7の材料は、上記第1実施形態と同様であるため、詳しい説明は省略する。
- 15

- 次に、上記燃料電池の製造方法の一例を図7を参照して説明する。なお、ここで使用する各ペーストも第1実施形態と同様にして準備される。まず、基板1上にスクリーン印刷法によって燃料極ペーストを矩形状に塗布した後、所定の時間及び温度で乾燥を行うことにより、燃料極5を形成する（図7（a））。そして、電解質ペーストをスクリーン印刷法により燃料極5の側面と当接するようにし、さらに燃料極5の厚みよりも厚くなるように塗布する。こうして塗布した電解質3を、所定の時間及び温度で乾燥し焼結することにより、電解質3とともに燃料極5を形成する（図7（b））。これにより、燃料極5よりも高い電解質3が
- 20 形成される。これに続いて、図7（c）に示すように、空気極ペーストをスクリーン印刷法により電解質3上に塗布した後、所定の時間及び温度で乾燥・焼結し、空気極5を形成する。このとき、空気極ペーストは、電解質3とほぼ同じ大きさに塗布する。以上の工程によって、図6で説明した燃料電池が形成される。
- 25

上記のように構成された燃料電池は、次のように発電が行われる。まず、各単

電池セルCの一方面上に、メタンやエタンなどの炭化水素からなる燃料ガスと空気との混合ガスを高温の状態（例えば、400～1000℃）で供給する。これにより、燃料極5と空気極7との間の電解質3で、酸素イオン伝導が起こって発電が行われる。

- 5 以上のように本実施形態に係る燃料電池では、電解質3と燃料極5とを隣接した状態で配置するとともに、この電解質3上に空気極7を配置している。これにより、従来例のように電池反応に不要な電解質3をできるだけ用いることなく、単電池セルを構成することができるため、燃料電池のコストパフォーマンスを向上することができる。
- 10 また、この燃料電池では、電解質3の厚みを燃料極5の厚みよりも大きくし、これによって両電極5、7が接触しないようにしている。すなわち、電解質3の厚みと燃料極5の厚みとの差が両電極5、7間の距離となっている。したがって、電解質3または燃料極5の厚みを調整するだけで、両電極5、7間の距離を調整できるため、例えば、燃料電池が微小化しても、両電極5、7を容易に非接触
- 15 状態にすることができ、燃料電池の製造を容易に行うことができる。

- ところで、本実施形態では、燃料極5の厚みを電解質3の厚みよりも小さくすることで、両電極5、7の非接触状態を実現しているが、これ以外の形態によって非接触状態を実現することもできる。例えば、図8（a）に示すように、電解質3及び燃料極5の厚みを略同一にしている場合、空気極7を電解質3上面全体に
- 20 塗布せずに燃料極5から隙間Sをあけて離間した状態にしておけば、上述したように燃料電池のコストパフォーマンスを向上することができる。或いは、図8（b）及び図8（c）に示すように、燃料極5と空気極7とが隙間Sをあけて離間していれば、燃料極5の一部が電解質3の上面に形成されていてもよい。すなわち、図8（b）に示すように、燃料極5の一部が電解質3上に配置されるように
- 25 したり、図8（c）に示すように、燃料極5全体の厚みを大きくしてその一部分が電解質3上に配置されるようにすることができる。こうすることで、図8（a）に示すように、電解質3と燃料極5とを正確に同一の厚さにする必要がないので、印刷による燃料電池の形成が容易になる。

また、本実施形態では、単電池セルCを1個用いて燃料電池を構成しているが

、これを複数用いてもよい。この場合、複数の単電池セルは、インターコネクターで接続する。その例を図9に示す。同図に示すように、この例では、2個の単電池セルCを示しているが、これ以上の単電池セルを用いることもできる。そして、各単電池セルC間では、一方の単電池セルC（同図の右側）の空気極7と他
5 方の単電池セルC（同図の左側）の燃料極5とをインターコネクター9によって接続している。インターコネクターの材料は、第1実施形態で示したものと同様である。なお、図示を省略しているが、両端電池セルには集電部が設けられ、ここから電流が取り出される。

また、本実施形態では、電解質3の上面に空気極7を形成し、電解質3と隣接
10 する位置に燃料極5を形成しているが、電極5、7の形成位置を反対にすることもできる。

以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明は、これに限定されるものではなく、その趣旨を逸脱しない限りにおいて種々の変更が可能である。例えば、上記各実施形態では、本発明を固体酸化物形燃料電池に適用した場合について説明したが、上述した材料以外に、高分子電解質形燃料電池に使用される材料
15 を用いて燃料電池を構成することも可能である。すなわち、基板としては、例えば、ポリイミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリパルバン酸アラミド、ポリアミド（ナイロン）、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリフェニレンサルファイド、ポリエーテル・エーテルケトン、ポ
20 リエーテルイミド、ポリアリレート、ポリエチレンナフタレート等の高分子フィルムを挙げることができる。また、エチレンテトラフルオロエチレン共重合体（ETFE）、テトラフルオロエチレン-ヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）、テトラフルオロパーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（PFA）、ポリテ
25 トラフルオロエチレン（PTFE）等の耐熱性フッ素樹脂を用いることもできる。更に、基板は、高分子フィルム以外に、アート紙、コート紙、軽量コート紙等の塗工紙、ノート用紙、コピー用紙等の非塗工紙等の紙であってもよい。このような基板の厚さは、 $20\mu\text{m}$ ～1mm程度とするのがよい。

また、基板は、安価で入手が容易な高分子フィルムが好ましい。高分子フィルムの中でも、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等が

薄くて柔軟性があるため好ましく、ポリエチレンテレフタレート等が耐熱安定性の観点からより好ましい。

- 5 基板上に形成される燃料極及び空気極は、触媒としての単金属又は触媒を担持させた炭素粒子に、水素イオン伝導性高分子電解質を加えた公知のものを使用することができる。燃料極に含まれる触媒としては、例えば金、白金、白金化合物等が挙げられる。白金化合物としては、例えば、ルテニウム、パラジウム、ロジウム、ニッケル、モリブデン、イリジウム、鉄等からなる群から選ばれる少なくとも1種の金属と白金との合金等が挙げられる。空気極に含まれる触媒は、通常、白金であり、燃料極に含まれる触媒は、通常、前記金属と白金との合金である
- 10 。

- 電解質としては、水素イオン伝導性高分子が使用でき、例えば、パーフルオロスルホン酸系のフッ素イオン交換樹脂、より具体的には、炭化水素系イオン交換膜のC-H結合をフッ素で置換したパーフルオロカーボンスルホン酸系ポリマー（PFS系ポリマー）等が挙げられる。電気陰性度の高いフッ素原子を導入することで、化学的に非常に安定し、スルホン酸基の解離度が高く、高いイオン伝導性が実現できる。このような水素イオン伝導性高分子電解質の具体例としては、
- 15 デュポン社製の「Nafion」、旭硝子（株）製の「Flemion」、旭化成（株）製の「Aciplex」、ゴア（Gore）社製の「Gore Select」等が挙げられる。

- 20 基板上に燃料極又は空気極を形成するにあたっては、触媒を担持させた炭素粒子及び水素イオン伝導性高分子電解質を適当な溶剤に混合、分散してペースト状にしておき、形成される燃料極又は空気極が所望の厚さになるように、このペーストを公知の方法に従い基板上に塗布するのがよい。燃料極形成用ペースト及び空気極形成用ペーストは、それらに含まれる炭素粒子に担持されている触媒の種類が異なるだけで、他の成分は同じでよい。

- 25 溶剤としては、例えば、各種アルコール類、各種エーテル類、各種ジアルキルスルホキンド類、水又はこれらの混合物等が挙げられる。これら溶剤の中でも、アルコール類が好ましい。アルコール類としては、例えば、メタノール、エタノール、n-プロパノール、イソプロパノール、n-ブタノール、tert-ブタノール等の炭素数1～4の一価アルコール、各種の多価アルコール等が挙げられ

る。

ペーストの塗布方法としては、特に限定されるものではなく、例えば、ナイフコーター、バーコーター、スプレー、ディップコーター、スピンコーター、ロールコーター、ダイコーター、カーテンコーター、スクリーン印刷等の一般的な方法

5 法を適用できる。

このようなペーストを塗布した後、乾燥することにより、電解質、燃料極又は空気極が形成される。乾燥温度は、通常40～100℃程度、好ましくは60～80℃程度である。乾燥時間は、乾燥温度にもよるが、通常5分～2時間程度、好ましくは30分～1時間程度である。燃料極又は空気極の厚さは、通常10～

10 200 μm 程度、好ましくは10～100 μm 程度、より好ましくは15～50 μm 程度がよい。

また、基板上に、電解質、燃料極、及び空気極を形成する順序は、上記各実施形態で示したものに限定されるものではなく、適宜変更することができる。或いは、高分子電解質形燃料電池用の材料によって燃料電池を構成する場合には、

15 電解質、燃料極、及び空気極のいずれか2つ以上を同時に形成することもできる。

また、高分子電解質型燃料電池用の材料によって燃料電池を構成する場合には、例えば空気極と燃料極とを完全に隔離した状態で、それぞれの極に必要な気体を導入して発電を行うこともできる。つまり、燃料極側に水素或いは炭化水素系

20 ガスを導入するとともに、空気極側に酸素或いは空気を導入する。

上記各実施形態では、基板の一方面にのみ単電池セルを配置しているが、これに加え、基板の他方面にも一方面的のものと同一構成の単電池セルを配置することができる。こうすることで、燃料電池をコンパクトにしたままで、高い発電出力を得ることができる。また、他方面の単電池セルを複数個配置することもでき、

25 この場合、インターコネクターによって各単電池セルを直列、並列、或いはこれらが混在した状態に接続することができる。

(実施例1)

以下に実施例を挙げて、本発明を更に詳細に説明する。ここでは、実施例1として、図5に示す燃料電池を作成した場合について説明する。

電解質 3 の材料として、SDC [(Ce, Sm) O₃] 粉末 (粒径 0. 0 1 ~ 1 0 μm、平均粒径 0. 1 μm) を使用し、セルロース系ワニスと混合して電解質ペーストを作製した。電解質ペーストの粘度は、スクリーン印刷に適した 5 × 1 0⁵ mPa · s とした。また、燃料極 5 の材料として、NiO 粉末 (粒径 0. 0 1 ~ 1 0 μm、平均粒径 1 μm) と、SDC [(Ce, Sm) O₃] 粉末 (粒径 0. 0 1 ~ 1 0 μm、平均粒径 0. 1 μm) とを重量比で 7 : 3 となるように混合した後、セルロース系ワニスと混合して燃料極ペーストを作製した。燃料極ペーストの粘度は、スクリーン印刷に適した 5 × 1 0⁵ mPa · s とした。また、空気極 7 の材料として、SSC [(Sm, Sr) CoO₃] 粉末 (粒径 0. 1 ~ 1 0 μm、平均粒径 3 μm) を使用し、セルロース系ワニスと混合して空気極ペーストを作製した。空気極ペーストの粘度は、スクリーン印刷に適した 5 × 1 0⁵ mPa · s とした。インターコネクター用の材料としては、Au 粉末 (0. 1 ~ 5 μm、平均粒径 2. 5 μm) を使用し、これにセルロース系ワニスを混合してインターコネクター用ペーストを作製した。インターコネクター用ペーストの粘度はスクリーン印刷に適した 5 × 1 0⁵ mPa · s とした。また、集電部用の材料もインターコネクター用の材料と同様のものを準備した。基板 1 には、厚みが 1 0 mm で 1 5 mm 角のアルミナ系基板を使用した。

まず、上述した電解質ペーストを基板 1 上にスクリーン印刷により幅 5 0 0 μm、塗布厚み 3 0 0 μm となるように塗布して、電解質 3 を形成した。各電解質 3 の間隔は、1 2 0 0 μm とした。そして、1 3 0 °C で 1 5 分間乾燥させた後、1 6 0 0 °C で 1 時間で焼結した。

次に、上述した燃料極ペーストを基板 1 上にスクリーン印刷により幅 5 0 0 μm、塗布厚み 5 0 0 μm となるように塗布して、燃料極 5 を形成した。そして、1 3 0 °C で 1 5 分間乾燥させた後、1 4 0 0 °C で 1 時間で焼結した。

続いて、上述した空気極ペーストを基板 1 上にスクリーン印刷により幅 5 0 0 μm、塗布厚み 5 0 0 μm となるように塗布して、空気極 7 を形成した。そして、1 3 0 °C で 1 5 分間乾燥させた後、1 2 0 0 °C で 1 時間で焼結した。こうして、3 個の単電池セルを形成した。これに続いて、各単電池セルの間に幅 2 0 0 μm、塗布厚み 5 0 0 μm のインターコネクター用ペーストを塗布し、1 5 0 °C で

20分間乾燥した。最後に、両端の単電池セルと隣接するように、幅 $200\mu\text{m}$ 、塗布厚み $500\mu\text{m}$ で集電部用ペーストを塗布して、 150°C で20分間乾燥して、乾燥したインターコネクター用ペーストとともに 1000°C で1時間焼結し、インターコネクター9及び集電部11を形成した。なお、電解質、燃料極、

5 空気極、インターコネクター、及び集電部の各長さは、7mmとした。

同様にして、電解質の幅が $1000\mu\text{m}$ および $1500\mu\text{m}$ の燃料電池1を製造し、電解質幅のみが異なる3種類の燃料電池について、電池セル10にメタンガスと空気との混合ガスを 800°C で導入し、電池特性の評価を行った。この結果を表1に示す。

10

表1. 各電流間での電圧低下レベル評価

電流(mA)	電解質幅 1.5mm	電解質幅 1.0mm	電解質幅 0.5mm
0-15mA	○	○	○
15-30mA	×	△	○
30-45mA	×	△	○

○：電圧低下小

△：電圧低下中

×：電圧低下大

15 表1に示すように、電解質幅の縮小により、電流負荷が大きい場合（15mA以上）における電圧低下を低減することが可能であった。この実験結果から、電解質の幅は $1000\mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $500\mu\text{m}$ 以下がより好ましいと考えられる。但し、電解質の幅が小さすぎると、燃料極及び空気極間における短絡のおそれが高まると共に、印刷等による大量生産にも対応し難くなるので、電解質

20 の幅は $1\mu\text{m}$ 以上が好ましく、 $10\mu\text{m}$ 以上がより好ましい。

（実施例2）

実施例2として図6に示す燃料電池を作成する。基板として厚さ1mmの Al_2O_3 を使用する。電解質の材料としてSDC [(Ce, Sm) O_3] 粉末（ $0.01\sim 10\mu\text{m}$ 、平均粒径 $5\mu\text{m}$ ）を使用し、セルロース系ワニスを混合して電

25 解質ペーストを作製した。電解質ペーストの粘度はスクリーン印刷法に適した $5\times 10^5\text{mPa}\cdot\text{s}$ とした。また、燃料極の材料として、酸化ニッケル（NiO

）粉末（粒径 $0.01\sim10\mu\text{m}$ 、平均粒径 $1\mu\text{m}$ ）と、SDC $[(\text{Ce}, \text{Sm})\text{O}_3]$ 粉末（粒径 $0.01\sim10\mu\text{m}$ 、平均粒径 $0.1\mu\text{m}$ ）とを重量比で7 : 3となるように混合した後、セルロース系ワニスを混合し、燃料極ペーストを作製した。燃料極ペーストの粘度はスクリーン印刷に適した $5\times10^5\text{mPa}\cdot\text{s}$ とした。また、空気極の材料として、SSC $[(\text{Sm}, \text{Sr})\text{CoO}_3]$ 粉末（ $0.1\sim10\mu\text{m}$ 、平均粒径 $3\mu\text{m}$ ）を使用し、セルロース系ワニスを混合して空気極ペーストを作製した。空気極ペーストの粘度も同様に、スクリーン印刷法に適した $5\times10^5\text{mPa}\cdot\text{s}$ とした。

次に、基板上にスクリーン印刷によって電解質ペーストを $520\times7000\mu\text{m}$ の範囲、厚み $200\mu\text{m}$ で塗工し、 130°C で15分間乾燥し、 1600°C で1時間焼結した。続いて、電解質上に $500\times7000\mu\text{m}$ の範囲、厚み $50\mu\text{m}$ で燃料極ペーストをスクリーン印刷によって塗工し、 130°C で5分間乾燥した後、 1450°C で1時間焼結した。これに続いて、空気極ペーストを電解質の側面と接触するように塗工し、 130°C で5分間乾燥した後、 1200°C で1時間焼結した。このとき、空気極ペーストは、 $500\times7000\mu\text{m}$ の範囲で厚さ $180\mu\text{m}$ となるように塗工した。これにより、燃料極と空気極との距離が $20\mu\text{m}$ となる燃料電池が形成された。

また、比較例を以下のように製造した。図10に示すように、この燃料電池は、電解質51の一方面に燃料極53と空気極55とを所定間隔をおいて配置したものである。燃料極53及び空気極55は $500\times7000\mu\text{m}$ の矩形状で厚みを $50\mu\text{m}$ に形成し、両電極53、55の間隔を $500\mu\text{m}$ にした。なお、電解質51、燃料極53、及び空気極55を構成する材料は、実施例と同じである。

したがって、実施例2では、比較例と比べて約 $2/3$ の面積の電解質を用いても、両電極間の距離を小さくすることができるため、低コストで比較例と同等の出力を得ることができる。

請 求 の 範 囲

1. 電解質、燃料極、及び空気極を有する単電池セルを少なくとも1つ備えた燃料電池であって、

前記単電池セルを支持する基板を備えており、

前記電解質が前記基板の一方面に配置されるとともに、前記燃料極及び空気極が前記基板の一方面において前記電解質を挟んで両側にそれぞれ隣接している燃料電池。

2. 前記燃料極又は空気極の前記基板表面からの高さが、いずれも前記電解質の前記基板表面からの高さよりも大きい請求項1に記載の燃料電池。

3. 前記電解質の上面に、前記燃料極及び空気極の一部が離間した状態で積層されている請求項2に記載の燃料電池。

4. 前記基板の他方面に配置され、電解質、燃料極及び空気極を有する少なくとも1つの単電池セルをさらに備え、

当該単電池セルにおいては、前記電解質が前記基板の他方面に配置されるとともに、前記燃料極及び空気極が前記基板の他方面において前記電解質を挟んで両側にそれぞれ隣接している請求項1に記載の燃料電池。

5. 前記基板上に前記単電池セルが複数配置され、これら単電池セルがインターコネクターによって接続されている請求項1に記載の燃料電池。

6. 前記電解質の前記燃料極及び空気極による挟持方向の幅が、 $10 \sim 500 \mu\text{m}$ である請求項1に記載の燃料電池。

7. 電解質、燃料極、及び空気極を有する単電池セルを少なくとも1つ備えた燃料電池であって、

前記単電池セルを支持する基板を備えており、

前記電解質が前記基板の一方面に配置されるとともに、前記燃料極及び空気極のいずれか一方の電極が前記電解質上に配置され、

他方の電極は、前記一方の電極と非接触状態で、しかも、少なくとも一部が前記基板の一方面に配置されて前記電解質と接触している燃料電池。

8. 前記他方の電極は、前記基板の一方面に前記電解質と隣接した状態で配置され、

前記電解質の厚みは、前記他方の電極の厚みよりも大きい請求項7に記載の燃料電池。

9. 前記単電池セルは前記基板上に複数個配置され、当該複数の単電池セル間はインターコネクターを介して接続されている請求項7に記載の燃料電池。

10. 前記電解質、燃料極、及び空気極は、印刷形成方法によって形成されている請求項7に記載の燃料電池。

11. 前記基板の他方面に配置され、電解質、燃料極及び空気極を有する少なくとも1つの単電池セルをさらに備え、当該単電池セルにおいては、

前記電解質が前記基板の他方面に配置されるとともに、前記燃料極及び空気極のいずれか一方の電極が前記電解質上に配置され、

他方の電極は、前記一方の電極と非接触状態で、しかも、少なくとも一部が前記基板の他方面に配置されて前記電解質と接触している請求項7に記載の燃料電池。

要 約 書

電解質 3、燃料極 5、及び空気極 7 を有する単電池セル C を少なくとも 1 つ備えた燃料電池であって、単電池セル C を支持する基板 1 を備えており、電解質 3 が基板 1 の一方面に配置されるとともに、燃料極 5 及び空気極 7 が基板 1 の一方面において電解質 3 を挟んで両側にそれぞれ隣接している。